

## SpDMDによるコヒーレントフォノンの減衰振動モード分解

## Mode Decompositions of Damped Oscillation in Coherent Phonon Signals by SpDMD

岩満 一功 \*1      相原 慎吾 \*2      溝口 幸司 \*3      五十嵐 康彦 \*4      村田 伸 \*4      岡田 真人 \*4  
 Kazunori Iwamitsu      Shingo Aihara      Kohji Mizoguchi      Yasuhiko Igarashi      Shin Murata      Masato Okada  
 赤井 一郎 \*5  
 Ichiro Akai

\*1熊本大学理学部      \*2熊本大学大学院自然科学研究科  
 Faculty of Science, Kumamoto University      Graduate School of Science and Technology, Kumamoto University

\*3大阪府立大学大学院理学研究科      \*4東京大学大学院新領域創成科学研究科  
 Graduate School of Science, Osaka Prefecture University      Graduate School of Frontier Sciences, The University of Tokyo

\*5熊本大学パルスパワー科学研究所  
 Institute of Pulsed Power Science, Kumamoto University

To show the advantage of a sparsity-promoting dynamic mode decomposition (SpDMD) method, we decomposed coherent phonon (CP) signals of Bismuth thin films into damped oscillation modes and other transient responses due to experimental artifacts. In the conventional Fourier transform (FT) method, it is difficult to analyze the experimental raw-data of CP signals because the FT method expands various vibrating and transient phenomena into excessive plane waves having quasi-continuous frequencies. In contrast, the SpDMD method can decompose such transient phenomena adequately. We succeeded mode decomposition of two damped oscillation in the experimental CP signal of the Bismuth thin film, which includes experimental artifacts such as fluctuation and ultrafast decaying components as well as these vibrating normal modes. This advantage clearly shows that the SpDMD method is extremely effective for these analyses of the transient phenomena.

## 1. はじめに

コヒーレントフォノン (CP) 信号 [Rosker, Cheng] は物質固有の格子振動の情報を反映しており、そのダイナミクス解明は物質の基礎研究から光誘起相転移の初期過程の解明等、物性物理学の様々な分野で重要な課題となっている。従来の CP 振動信号解析にはフーリエ変換を用いた周波数・初期位相の推定が行われてきたが、CP 信号は減衰振動を示し、実験データには必ず実験的アーティファクトが重畳するためフーリエ変換スペクトル形状を複雑なものとしてしまい、固有振動モードの振動数・初期位相の推定を困難とさせていた。

本研究では、CP の物理的起源に基づく減衰振動信号を的確に解析可能である SpDMD (Sparsity-promoting Dynamic Mode Decomposition) [Jovanović] を CP 信号の実験データに対して適用し、モード分解解析を行った。その SpDMD による解析結果をフーリエ変換の結果と比較し、SpDMD の有効性を示す。

## 2. 解析手法

本解析で用いる SpDMD [Jovanović] は、時空間で発展する信号を時間と空間の構造へと分離する DMD (Dynamic Mode Decomposition) [Schmid] と、DMD の結果からデータを構成する上で重要な構造を自動的に抽出する LASSO 法 (Least Absolute Shrinkage and Selection Operator) [Tibshirani] を組み合わせた手法である。

### 2.1 解析データ

DMD が解析対象としているデータは、時空間の二次元データである。一方で、解析対象である CP 信号  $(y_1, \dots, y_N)$  は、一定時間間隔  $\Delta t$  で  $N$  個計測される一次元時系列データであるため、(2) 式のように DMD による解析が可能な  $M \times (N - M + 1)$  行列  $\Psi_0 := (\vec{\psi}_0, \dots, \vec{\psi}_{N-M})$ ,  $\Psi_1 := (\vec{\psi}_1, \dots, \vec{\psi}_{N-M+1})$  の二次元時空間信号へと転写したものを解析対象とする。

$$\Psi_0 := \begin{pmatrix} y_0 & y_1 & \cdots & y_{N-M} \\ y_1 & y_2 & \cdots & y_{N-M+1} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ y_{M-1} & y_M & \cdots & y_{N-1} \end{pmatrix} \quad (1)$$

$$\Psi_1 := \begin{pmatrix} y_1 & y_2 & \cdots & y_{N-M+1} \\ y_2 & y_3 & \cdots & y_{N-M+2} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ y_M & y_{M+1} & \cdots & y_N \end{pmatrix}$$

### 2.2 SpDMD

DMD [Schmid] では、CP 信号から転写された 2 つの行列が時間発展不変形である  $\Psi_1 = A\Psi_0$  の関係性を満たすと仮定した場合に、 $\Psi_0$  を (2) 式に示した通り、空間・時間発展構造へと分離する。

$$\Psi_0 = \Phi D_\alpha V_{\text{and}} \quad (2)$$

(2) 式において  $r := \text{rank}(\Psi_0)$  とした時、 $\Phi$  は DMD モードの空間方向の潜在構造 ( $\Phi := (\vec{\phi}_1, \dots, \vec{\phi}_r)$ ) を表す  $M \times r$  行列、 $D_\alpha$  は DMD モード振幅  $\vec{\alpha} := \alpha_1, \dots, \alpha_r$  を表す対角行列、 $V_{\text{and}}$  は (3) 式に示すように時間方向の潜在構造を表す

連絡先: 岩満一功, 熊本大学理学部,  
 〒 860-8555 熊本市中央区黒髪 2-39-1,  
 TEL: 096-342-3358, iwamitsu@sci.kumamoto-u.ac.jp

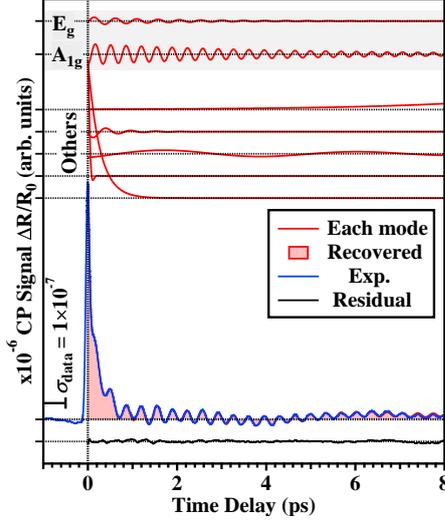


図1: 解析対象信号 (Exp.) と SpDMD から得た各モード (Each mode)、それらの合成で得られる再現信号 (Recovered) と Exp. と Recovered の残差信号 (Residual)。

$r \times (N - M + 1)$  行列である。

$$V_{\text{and}} = \begin{pmatrix} 1 & \mu_1 & \cdots & \mu_1^{N-M} \\ 1 & \mu_2 & \cdots & \mu_2^{N-M} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 1 & \mu_r & \cdots & \mu_r^{N-M} \end{pmatrix} \quad (3)$$

(3) 式の  $\mu_i$  は  $\Psi_1 = A\Psi_0$  を満たす  $A$  の固有値に相当する。

DMD により得られた  $r$  個の多数の DMD モードは、DMD モード振幅  $\vec{\alpha}$  に対して (4) 式のように LASSO 法による正則化を行うことで、実験データに含まれるノイズの刈り込みを行う。[Schmid]

$$\vec{\alpha}_{\text{Sp}} = \arg \min_{\vec{\alpha}} \left( \|\Psi_0 - \Phi D_{\alpha} V_{\text{and}}\|_{\text{F}}^2 + \lambda \sum_{j=1}^r |\alpha_j| \right) \quad (4)$$

### 2.3 減衰振動/指数減衰の表現

SpDMD により得られた時刻  $n\Delta t$  での  $j$  番目の DMD モードの値は (5) 式で表現される。

$$\vec{\psi}_n := \vec{\psi}(n\Delta t) = \alpha_j \mu_j^n \vec{\phi}_j \quad (5)$$

(5) 式において、時間発展成分  $\mu_j$  は複素数  $r_j \exp(i\theta_j)$  で表現できるため、 $\Delta t$ ,  $r_j$ ,  $\theta_j$  から減衰振動を特徴づける減衰時定数と振動数を  $\tau_j := -\Delta t / \ln r_j$ ,  $f_j := \theta_j / (2\pi\Delta t)$  として表現することができる。従って、時刻  $n\Delta t$  における DMD モード値  $\vec{\psi}_n$  は  $\vec{R}_j := \alpha_j \vec{\phi}_j$  と置くと、(6) 式になる。

$$\vec{\psi}_n = \sum_{\rho} \vec{R}_{\rho} e^{-(t_n/\tau_{\rho})} + \sum_{\nu} \vec{R}_{\nu} e^{-(t_n/\tau_{\nu})} e^{i(2\pi f_{\nu} t_n)} \quad (6)$$

(6) 式にて  $t_n := n\Delta t$  であり、第 1 項目は  $f_j = 0$  の非振動成分で、時定数  $\tau_{\rho}$  で単純指数減衰成分を表し、第 2 項目が  $f_j \neq 0$  の振動成分で、時定数  $\tau_{\nu}$  で振幅が減衰する減衰振動成分を表している。また、得られる複素数の  $\mu_j$  から、実験において実

数で観測される CP 信号に対応させるため複素共役をとり、(7) 式のように書く。

$$\psi_t := \sum_{\rho} c_{\rho} e^{-(t_n/\tau_{\rho})} + \sum_{\nu'} e^{-(t_n/\tau_{\nu})} (a_{\nu} \cos 2\pi f_{\nu} t_n + b_{\nu} \sin 2\pi f_{\nu} t_n) \quad (7)$$

(7) 式における第二項目の減衰振動成分は

$$\sum_{\nu'} e^{-(t_n/\tau_{\nu})} A_{\nu} \cos \left\{ 2\pi f_{\nu} t_n + \pi \left( \frac{\varphi_{\nu}}{180} \right) \right\}$$

と表現でき、 $A_{\nu} := \sqrt{a_{\nu}^2 + b_{\nu}^2}$  は減衰振動の振幅を、 $\varphi_{\nu}$  は (8) 式で定義される初期位相を表している。

$$\varphi_{\nu} := -\tan^{-1} \left( \frac{b_{\nu}}{a_{\nu}} \right) \times \frac{180}{\pi} \quad (8)$$

### 3. 結果と考察

図 1 の青線にビスマス (Bi) 薄膜の CP 信号 (Exp.) を示す。Bi 薄膜はサファイア基板上に 150 nm の厚さで蒸着させた試料を用い、測定は室温で行い、反射型のポンププローブ分光法 [Hase] を用いた。その実験データには、時間原点近傍で急激に減衰する成分に加え、信号全体には複数の振動モードが重畳しているのが分かる。

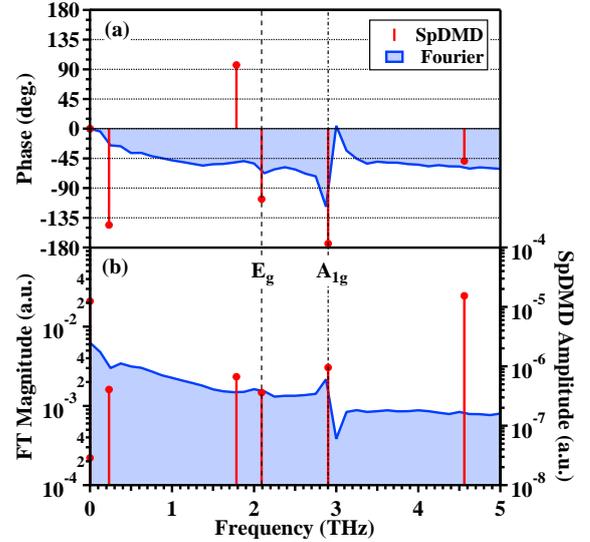


図2: 解析対象における FT スペクトル (Fourier) と SpDMD により抽出された各モード (SpDMD)。 (a) は周波数に対する位相  $\varphi$ 、 (b) は周波数に対する振幅をそれぞれ表している。

図 1 に示す Each mode と Recovered は、それぞれ SpDMD により抽出された各モードとそれらの合成による再現信号を表している。モード数の決定は実験データに重畳されるノイズと、実験データと再現データの残差の標準偏差 (RMSD) が同程度となる規範を用い、その結果モード数 7 を採用した。実験データに重畳するノイズは図 1 に示す CP 信号を含まない負の時間領域で決定した。

図 2 に対象データの高速フーリエ変換スペクトル (Fourier) と SpDMD から抽出された各モード (SpDMD) を示す。図 2(a)

には初期位相の周波数依存性を、図 2(b) には振幅の周波数依存性を示しており、縦の一点鎖線と破線がそれぞれ Bi 薄膜の固有振動数である  $A_{1g}$ :  $\sim 2.9$  THz,  $E_g$ :  $\sim 2.1$  THz[Lannin] の位置を表している。

図 2(b) の青で示したフーリエ強度スペクトルにおいて、 $E_g$  モードの位置には微弱的なピーク構造が見られるのに対し、 $A_{1g}$  モードの位置では、分散的な形状の構造が見られる。これは本来、減衰振動波形のフーリエ変換の強度スペクトルでは、減衰時定数で特徴づけられるスペクトル幅を持ったピーク構造が共鳴位置に観測されるはずである。しかし、実際の実験データでは時間原点近傍の高速減衰成分等が重畳するため、そのフーリエ強度スペクトルを強く変形させる。事実図 2(b) に示した様に、その高速減衰成分を平面波基底で展開しているため、周波数の広い範囲でフーリエ振幅を持ち、それが離散的な周波数をもつ規準振動と干渉して、 $A_{1g}$  の共鳴に見られるような分散構造を与えてしまう。

更に図 2(a) に示した位相のフーリエスペクトルでは、元々規準振動の共鳴近傍で位相の飛びが起こるため、フーリエスペクトルから初期位相を推定することは困難である。これらの不都合は、単純指数減衰応答や、減衰特性を持った振動波形を、時間的に振幅が変化しない平面波を基底にとってモード展開しているためである。

それに対し DMD では、(6), (7) 式で示した様に、指数関数減衰と振幅が指数関数的に変化する振動波形も扱える適切な基底関数でモード展開することが可能である。物質固有の規準振動は元より、実験装置を原因とした実験的アーティファクトが、これらの時間応答関数で説明できるものであれば、それら全てを適切に分解することができる。

さらに SpDMD を用いることにより、データに含まれるノイズを刈り込んで、実験データを説明するスパースな主要成分も、ノイズの大きさを規範として、自動的に抽出することが可能である。その結果を、図 2 の赤色の棒と点で示し、得られた各スパース解のパラメータを表 1 にまとめた。この  $E_g$  と  $A_{1g}$  の基準モードでは、周波数と初期位相も含む全てのパラメータが適切に推定されており、これらのモード間で約 70 度の初期位相のずれがあることが分かる。

表 1: SpDMD により推定されたパラメータ。

Mode	Amplitude	Frequency	Initial Phase	Decay Time
Unit	$c_\rho; A_\nu$ a.u.	$f_{\nu,\rho}$ THz	$\varphi_{\nu,\rho}$ deg.	$\tau_{\nu,\rho}$ ps
$E_g$	$3.59 \times 10^{-7}$	2.09	-107	1.85
$A_{1g}$	$9.53 \times 10^{-7}$	2.90	-174	4.32
	$2.88 \times 10^{-8}$	0.00	0	-2.73
	$6.67 \times 10^{-7}$	1.78	96.5	0.534
Others	$4.08 \times 10^{-7}$	0.231	-146	7.75
	$1.54 \times 10^{-5}$	4.56	-49.0	0.0338
	$1.25 \times 10^{-5}$	0.00	0	0.261

#### 4. まとめ

我々は、SpDMD を用いてビスマス (Bi) 薄膜の CP 信号のモード分解解析を行った。CP 信号の実験データは減衰特性を示す振動波形と単純指数減衰応答を示すような実験的アーティファクトを含んでおり、時間原点近傍の高速減衰成分等が重畳するデータではフーリエ変換スペクトルを強く変形させる。しかし、SpDMD では減衰振動/指数減衰のような時間応答関数

で説明できるものであれば、全て適切な基底で分解することができ、対象データの解析では、ノイズの大きさを規範として 7 つというスパースな減衰振動/指数減衰のモード展開でデータを再現することに成功した。これは SpDMD が既存の解析手法の諸問題を解決する新しい解析法であることを示している。

#### 参考文献

- [Rosker] M. J. Rosker, F. W. Wise, and C. L. Tang, Phys. Rev. Lett. **57**, 321 (1986).  
 [Cheng] T. K. Cheng, S. D. Brorson, A. S. Kazeroonian, J. S. Moodera, G. Dresselhaus, M. S. Dresselhaus, and E. P. Ippen, Appl. Phys. Lett. **57**, 1004 (1990).  
 [Tibshirani] R. Tibshirani, J. Royal Stat. Soc. B **58**, 267 (1996).  
 [Schmid] Peter J. Schmid, J. Fluid Mech. **656**, 5 (2010).  
 [Jovanović] Mihailo R. Jovanović, Peter J. Schmid, and Joseph W. Nichols, Phys. Fluids **26**, 024103 (2014).  
 [Lannin] J. S. Lannin, J. M. Calleja, and M. Cardona, Phys. Rev. B **12**, 585 (1975).  
 [Hase] M. Hase, M. Kitajima, S.-i. Nakashima, and K. Mizoguchi, Phys. Rev. Lett. **88**, 067401 (2002).